

**Requested document:****[JP11049939 click here to view the pdf document](#)****THERMOPLASTIC POLYESTER RESIN COMPOSITION**

Patent Number: JP11049939  
Publication date: 1999-02-23  
Inventor(s): YOSHIHARA NORI; SAKAI SATOSHI  
Applicant(s):: TOYOBO CO LTD  
Requested Patent: JP11049939  
Application Number: JP19970206171 19970731  
Priority Number (s):  
IPC Classification: C08L67/02 ; C08G73/00 ; C08K3/00 ; C08K3/34 ; C08K5/05 ; C08K5/29 ; C08K7/04 ; C08K7/14 ; C08L79/00  
EC Classification:  
Equivalents:

---

**Abstract**

---

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To obtain thermoplastic polyester resin compositions excellent in molding flowability and mechanical strength in thin-wall molded articles and, at the same time, capable of giving molded articles excellent in hydrolytic resistance and surface gloss as well.

**SOLUTION:** Thermoplastic polyester resin compositions comprise, based on (A) 100 pts.wt. thermoplastic polyester, (B) 0.1-10 pts.wt. polyalkylene glycol in which at least one terminal group is a carboxylic acid ester and/or an alkyl ether or a derivative thereof, (C) 0.05-30 pts.wt. carbodiimide compound and 1-120 pts.wt. inorganic reinforcer.

---

Data supplied from the esp@cenet database - I2

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平11-49939

(43) 公開日 平成11年(1999) 2月23日

| (51) IntCl. <sup>9</sup> | 識別記号 | F I           |
|--------------------------|------|---------------|
| C 0 8 L 67/02            |      | C 0 8 L 67/02 |
| C 0 8 G 73/00            |      | C 0 8 G 73/00 |
| C 0 8 K 3/00             |      | C 0 8 K 3/00  |
| 3/34                     |      | 3/34          |
| 5/05                     |      | 5/05          |

審査請求 未請求 請求項の数 1 O L (全 5 頁) 最終頁に続く

|           |                  |          |   |
|-----------|------------------|----------|---|
| (21) 出願番号 | 特願平9-206171      | (71) 出願人 | 000003160<br>東洋紡績株式会社<br>大阪府大阪市北区堂島浜2丁目2番8号 |
| (22) 出願日  | 平成9年(1997) 7月31日 | (72) 発明者 | 葭原 法<br>滋賀県大津市堅田二丁目1番1号 東洋紡<br>績株式会社総合研究所内  |
|           |                  | (72) 発明者 | 坂井 智<br>滋賀県大津市堅田二丁目1番1号 東洋紡<br>績株式会社総合研究所内  |

(54) 【発明の名称】 熱可塑性ポリエステル樹脂組成物

(57) 【要約】

【課題】薄肉成形品での成形流動性、機械的強度が優れ、しかも耐加水分解性が優れると共に、表面光沢性に優れた成形品が得られる熱可塑性ポリエステル樹脂組成物を得ること。

【解決手段】(A) 熱可塑性ポリエステル100重量部に対し、(B) 少なくとも一方の末端がカルボン酸エステル及び／又はアルキルエーテルであるポリアルキレングリコールまたはその誘導体0.1～10重量部、

(C) カルボジイミド化合物0.05～30重量部および(D) 無機強化剤1～120重量部含有することを特徴とする熱可塑性ポリエステル樹脂組成物。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】(A)熱可塑性ポリエステル100重量部に対し、(B)少なくとも一方の末端がカルボン酸エステル及び／又はアルキルエーテルであるポリアルキレングリコールまたはその誘導体0.1～10重量部、

(C)カルボジイミド化合物0.05～30重量部および(D)無機強化剤1～120重量部含有することを特徴とする熱可塑性ポリエステル樹脂組成物。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明が属する技術分野】本発明は、成形用の熱可塑性ポリエステル樹脂組成物に関する。更に詳しくは、薄肉成形品での成形流動性、機械的強度が優れ、しかも耐加水分解性が優れると共に、表面光沢性に優れた成形品が得られる熱可塑性ポリエステル樹脂組成物に関する。

## 【0002】

【従来の技術】ポリエチレンテレフタレート及びポリブチレンテレフタレート等の熱可塑性ポリエステルは、機械的特性、電気的特性等が優れているため、自動車部品、電気・電子機器部品等の種々の用途に広く利用されている。しかしながら熱可塑性ポリエステルは、高温多湿の雰囲気中にさらされる場合において機械的特性の保持、すなわち耐加水分解性が劣るという欠点を有する。ところが、電気あるいは電子部品分野において最近では機能性アップの要求に伴い部品形状が小型化、薄肉化されてきたため使用時の雰囲気が従来よりも高温多湿になるため、樹脂組成物に対しては、優れた耐加水分解性を示すと共に、良好な成形品を得るための成形流動性を有することが要求される。

【0003】従来この要求に対しては、熱可塑性ポリエステルに多官能エポキシ化合物、オキサゾリン化合物、カルボジイミド化合物等の末端封鎖剤及び／又はエポキシ基含有オレフィン共重合体を添加する方法等がある。しかしながら、このような方法では加熱溶融時に溶融粘度が上昇し、成形時の流動性が低下する問題があった。また、エポキシ基含有オレフィン共重合体を添加する場合は耐熱性や弾性率が低下しがちで、物性バランスが不十分であるという問題があった。

## 【0004】

【発明が解決しようとする課題】本発明は熱可塑性ポリエステル樹脂組成物において、熱可塑性ポリエステルの持つ優れた機械的特性を維持し、更に、成形流動性、耐加水分解性に優れた樹脂組成物を提供することを課題とするものである。

## 【0005】

【課題を解決するための手段】本発明者らは、上記問題点の改善について鋭意検討した結果、少なくとも一方の末端がカルボン酸エステル及び／又はアルキルエーテル

であるポリアルキレングリコールまたはその誘導体とカルボジイミド化合物を併用添加することにより、上記課題が達成できることを見出し、遂に本発明を完成するに至った。すなわち本発明は、(A)熱可塑性ポリエステル100重量部に対し、(B)少なくとも一方の末端がカルボン酸エステル及び／又はアルキルエーテルであるポリアルキレングリコールまたはその誘導体0.1～10重量部、(C)カルボジイミド化合物0.05～30重量部および(D)無機強化剤1～120重量部含有することを特徴とする熱可塑性ポリエステル樹脂組成物である。

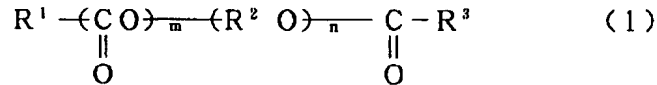
【0006】本発明において使用される(A)熱可塑性ポリエステルは、ポリエチレンテレフタレートやポリブチレンテレフタレートが主として挙げられ、エチレングリコールまたはブチレングリコールとテレフタル酸(その誘導体を含む)との重合体のみならず、少なくとも80モル%以上のエチレンテレフタレートやブチレンテレフタレート繰り返し単位を含む共重合ポリエステルが挙げられる。共重合成分としては公知の酸成分および／またはグリコール成分が使用できる。すなわち、共重合成分としては、例えば、イソフタル酸、ナフタレン1,4または2,6ジカルボン酸、ジフェニルエーテル4,4ジカルボン酸、アジピン酸、セバシン酸のような酸成分；エチレングリコール、プロピレングリコール、ブチレングリコール、ジエチレングリコール、ネオペンチルグリコール、シクロヘキサジメタノール、2,2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパンのようなグリコール成分；p-オキシ安息香酸、p-ヒドロキシエトキシ安息香酸のようなオキシ酸があげられる。

【0007】また本発明に使用される熱可塑性ポリエステル(ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート)は、フェノール/テトラクロロエタン混合溶媒(6/4重量比)により30℃で測定して求めた固有粘度が通常0.4以上であり、0.5以上が好ましい。また上記ポリエステル樹脂を主体とし、これにポリシクロジメチレンテレフタレート、ポリエチレンナフタレート等の芳香族ポリエステルやポリブチレンアジペート、ポリエチレンアジペート、ポリラクトン等の脂肪族ポリエステルやポリカーボネート等、またその他の熱可塑性樹脂を混合してもよいが、ポリアミド樹脂など吸湿性の大きな樹脂は混合することが好ましくない。

【0008】本発明に使用される(B)少なくとも一方の末端がカルボン酸エステル及び／又はアルキルエーテルであるポリアルキレングリコールまたはその誘導体としては、下記一般式(1)及び／又は一般式(2)で示される化合物が挙げられる。

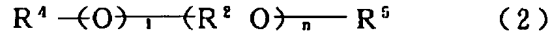
## 【0009】

## 【化1】



【0010】

【化2】



ただし、一般式(1)、(2)においてl、mは0または1、nは2～30の整数、R<sup>1</sup>、R<sup>3</sup>はC1～18の脂肪族炭化水素基または芳香族炭化水素基であって、ただしm=0のときR<sup>1</sup>は水素原子を示す。R<sup>2</sup>はC2～6の脂肪族炭化水素基、R<sup>4</sup>、R<sup>5</sup>はC1～18の脂肪族炭化水素基であって、ただしl=0のときR<sup>4</sup>は水素原子を示す。

【0011】前記(B)成分において好ましい化合物としては、ポリエチレングリコール、ポリプロピレングリコール、ポリテトラメチレングリコール、ポリネオペンチルグリコール、ポリエチレングリコールポリプロピレングリコール共重合体、ポリエチレングリコールポリテトラメチレングリコール共重合体などの両末端を酢酸、プロピオン酸、酪酸、バレリアン酸、カプロン酸、カプリル酸、ラウリル酸、パルミチル酸、ステアリン酸、安息香酸等でエステル化したもの、または前記グリコールのメチルエーテル、エチルエーテル、ブチルエーテル、ラウリルエーテル、ステアリルエーテルが挙げられる。この平均分子量は5000以下であることが好ましく、更に200～3000、特に300～1500程度であることが好ましい。あまり高分子量になると相溶性が低下し、結晶化促進効果が失われるので好ましくなく、又一方、低分子量になると成形時にガスが発生するので好ましくない。なお、(B)少なくとも一方の末端がカルボン酸エステル及び／又はアルキルエーテルであるポリアルキレングリコールまたはその誘導体は、(A)成分100重量部当たり0.1～10重量部が好ましく、特に1～6重量部が好ましい。0.1重量部未満では低温成形性に対する効果が低く、成形流動性や表面光沢が改善されず、又10重量部以上を越えると、ポリエステル物の物性が低下するので好ましくない。

【0012】本発明において使用される(C)カルボジイミド化合物は、分子内に少なくともひとつのカルボジイミド基を有する化合物である。これらのカルボジイミドは、脂肪族、脂環族、芳香族のいずれかでもよい。例えば、ポリ(4,4'-ジフェニルメタンカルボジイミド)、ポリ(p-フェニレンカルボジイミド)、ポリ(m-フェニレンカルボジイミド)、ポリ(トリルカルボジイミド)、ポリ(ジイソプロピルフェニレンカルボジイミド)、ポリ(メチルジイソプロピルフェニレンカルボジイミド)、ポリ(トリイソプロピルフェニレンカルボジイミド)等があげられる。該カルボジイミド化合物は、単独又は2種以上組み合わせて用いられる。

【0013】前記カルボジイミド化合物は、(A)成分

100重量部に対して0.05～20重量部、特に0.1～15重量部が好ましく、更に0.4～10重量部が好ましい。0.05重量部未満では耐加水分解性に対して効果が小さく、10重量部以上を越えると、熱可塑性ポリエステルの機械的強度等の物性が低下する。

【0014】本発明において使用される(D)無機強化剤は、必要に応じて配合され、結晶核剤効果と補強効果により、熱変形温度や寸法精度及び強度や剛性を高めるもので、具体的にはタルク、ワラストナイト、モンモリナイト、雲母、カオリン等の粉末状無機強化剤やガラス繊維、炭素繊維、ウイスキー等の繊維状強化剤が好ましい。

【0015】該無機強化剤にガラス繊維を使用する場合、特に限定されないが、直径20μm以下、好ましくは15μm以下、更に好ましくは10μm以下のものが使用できる。たとえば、長繊維タイプ(ロービング)や短繊維タイプ(チョップドストランド)等から選択して使用することができる。また、ガラス繊維はたとえばポリ酢酸ビニル、ポリエステル等の収束剤、シラン化合物、ボロン化合物等のカップリング剤、その他の表面処理剤等で処理されていても良い。

【0016】該無機強化剤は、単独又は2種以上組み合わせ用いられる。無機強化剤の配合量は、(A)熱可塑性ポリエステル100重量部に対して1～120重量部、好ましくは5～100重量部、更に好ましくは10～80重量部である。なお、120重量部を越えて配合すると、成形時の流動性が著しく悪くなり、成形品の表面光沢が低下するので好ましくない。

【0017】本発明の組成物には、本発明の目的を損なわない範囲で、難燃剤、難燃助剤、無機充填材、核材、安定剤、酸化防止剤、光安定剤、離型剤、発泡剤、帯電防止剤、抗菌剤等を配合してもよい、かくして得られた組成物は適宜公知の成形方法例えば射出成形、押出成形などで容易に成形することができ、得られる成形品は熱可塑性ポリエステル本来の優れた性能を保持したまま、製品に応じて必要とされる耐加水分解性を有するものである。

【0018】本発明の熱可塑性ポリエステル樹脂組成物の製造方法としては、特に制限されるものではなく、任意の方法で行われる。例えば、全成分を予備混合した後、押出機やニーダ中で熔融混練する方法や、予め任意の数成分を押出機やニーダ中で混練り配合して得たペレットに、さらに他成分を熔融混練りする方法等が挙げられる。

【0019】

【発明の実施の形態】以下に本発明の好ましい一実施形態を示す。ポリエチレンテレフタレート樹脂(極限粘度

数0.5～0.7)およびポリブチレンテレフタレート樹脂(極限粘度数0.7～0.9)を100重量部とし、ポリエチレングリコールジベンゾエート1～5重量部、ポリエチレングリコールジメチルエーテル1～5重量部、芳香族ポリカルボジイミド1～7重量部、タルク1～5重量部およびガラス繊維10～50重量物予備混合した後、2軸押出機を用いて、シリンダー温度250～300℃で熔融混練りしてコンパウンドチップを得た。得られたチップを溶融して、押し出したまたは射出成形することにより、炊飯器の保護枠、保護枠胴、蓋及び把手等の家電品、イグニッションコイル、ディストリビュータキャップ、ABSセンサー等自動車部品等、各種電気・電子部品、自動車部品等に应用することができる。

#### 【0020】

【実施例】以下本発明を実施例を用いて具体的に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。なお、実施例中の部及び%は、重量基準である。又、実施例中における試験片の成形方法およびその特性評価は下記の方法で行った。

【0021】試験片の成形方法：得られた樹脂組成物を130℃で4時間乾燥した後、シリンダー温度270℃、金型温度120℃又は80℃に調整された射出成形機(日精樹脂工業社FS75)により、流動長評価用金型(流路：幅10mm、厚み1mm)にて射出圧力1000kg/cm<sup>2</sup>で、幅10.0mm、厚み1.0mmの

バーおよび幅12.0mm、厚み3.2mm、長さ218mmのダンベル試験片を得た。得られたバーおよび試験片の評価を以下の方法で行った。

(1)流動長：流動長評価用金型で得られたバーの長さを測定した。

(2)引張強度：ASTMD-638に従い引張試験を行い、最大強度を求めた。

(3)耐加水分解性：初期及び100℃の熱水浸漬100時間処理後の試験片について、ASTMD-638に従い引張試験を行い、その保持率にて評価した。

#### 【0022】実施例1～5、比較例1～5

ポリエチレンテレフタレート樹脂(極限粘度数0.62、以下PETと略す)、ポリブチレンテレフタレート樹脂(極限粘度数0.80、以下PBTと略す)、ポリエチレングリコールジベンゾエート(PEGDBEと記す、PEG分子量1000)、ポリエチレングリコールジメチルエーテル(PEGDMEと記す、PEG分子量1000)、芳香族ポリカルボジイミド(スタバクゾールP、バイエル社)、タルク(ミクロンホワイト5000A、林化成社)、ガラス繊維(3mmカット)を表1に示す割合に予備混合した後、2軸押出機PCM30のホッパーに投入し、シリンダー温度270～280℃で熔融混練りしてコンパウンドチップを得た。その結果を表1に示す。

#### 【0023】

【表1】

|                           | 実施例  |      |      |      |      | 比較例  |      |      |      |      |
|---------------------------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|
|                           | 1    | 2    | 3    | 4    | 5    | 1    | 2    | 3    | 4    | 5    |
| PET                       | 100  | 100  | 30   | 30   |      | 100  | 100  | 100  | 30   |      |
| PBT                       |      |      | 70   | 70   | 100  |      |      |      | 70   | 100  |
| PEGDBE                    | 3    | 3    | 3    |      | 3    |      | 3    |      |      |      |
| PEGDME                    |      |      |      | 3    |      |      |      |      |      |      |
| 芳香族ポリカルボジイミド              | 2    | 3    | 3    | 3    | 4    | 3    |      | 10   | 2    | 3    |
| ガラス繊維                     | 30   | 30   | 30   | 30   | 30   | 30   | 30   | 30   | 30   | 30   |
| タルク                       |      | 3    |      | 3    |      | 3    | 3    | 10   |      | 3    |
| 流動長 (mm)                  | 120  | 118  | 126  | 123  | 100  | 72   | 108  | 63   | 88   | 66   |
| 引張強度(kg/cm <sup>2</sup> ) | 1530 | 1490 | 1480 | 1490 | 1500 | 1520 | 1500 | 1360 | 1470 | 1490 |
| 耐加水分解性(%)                 | 91   | 92   | 90   | 91   | 92   | 90   | 70   | 78   | 83   | 88   |

#### 【0024】

【発明の効果】表1より明らかなように、本発明の組成物はいずれも成形流動性、耐加水分解性が共に優れ、機械的強度が優れていることが判る。したがって、本発明

組成物により、流動性の低下を損なうことなく、機械的強度及び耐加水分解性にすぐれた成形品を得ることができるものであり、各種電気・電子部品、自動車部品等の広い分野で使用でき、産業界に寄与すること大である。

フロントページの続き

(51)Int.Cl.<sup>6</sup>

識別記号

FI

C08K 5/29

C08K 5/29

7/04

7/04

7/14

7/14

C08L 79/00

C08L 79/00

Z

//C08L 67/02

71:02)